

DEUTSCHES PATENTAMT



WEST GERMANY
GROUP 176....
CLASS 55....
RECORDED

DT 26 52 432 A1

Offenlegungsschrift 26 52 432

- ①
- ②
- ③
- ④

Aktenzeichen: P 26 52 432.3-43
Anmeldetag: 17. 11. 76
Offenlegungstag: 26. 5. 77

③ Unionspriorität:

- ②
- ③
- ④

17. 11. 75 Japan 137280-76

38471Y/22 J01
TOKYO SHIBAURA ELEC LTD
17.11.75-JA-137280 (26.05.77) B01d-59/12
Membrane permeation separator for gas mixts. - e.g. mixts. of inert gases such as nitrogen, xenon, krypton

TOKE 17.11.75
*DT 2652-432

J(1-C3)

The separator has two sepn. cells, each of which is provided with a membrane. A feed line delivers the mixt. to be sepd. to the high press. side of the first cell and an offtake-line removes either the gas which does, or that which does not pass through the membrane.

The other gas is delivered by a connecting line to the high press. side of the second cell. A recirculation line delivers from the second cell to the feed side of the first cell the gas which does, or that which does not pass through the second cell membrane. An offtake line from the second cell removes the other gas.

ADVANTAGE

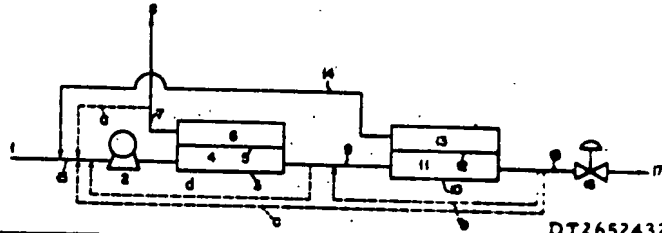
The sepn. factor is higher than in conventional systems.

DETAILS

The mixt. to be sepd. is compressed (2) and delivered to the high press. side of cell (3). A gas enriched in one component permeates through membrane (5) into low press. side (6) and is removed to storage (8). The lean gas is

transferred (9) to the high press. side (11) of second cell (10) where further permeation through membrane (12) produces, in low press. side (13) an enriched gas which is recycled (14) to the system inlet (15) where it is mixed with feed-stock (1). The lean gas from cell (10) is discharged through a pressure reduction valve (16) to storage (17).

In an alternative embodiment, using membranes having different permeation characteristics the scheme can be altered to suit different gas mixts. (e.g. recirculation line (a,b,c,d) can be incorporated). Pairs of cells (3,10) can be arranged in stages for further sepn. in which case rich gas (7) from cell (3) passes to further pairs of cells (8) and lean gas from cell (10) passes to further pairs of cells (17) for stripping. (27pp1243)



DT2652432

DT 26 52 432 A 1

88401 88807

Tokyo Shibaura Electric Co., Ltd.,
Kawasaki-shi, Japan

Möhlstraße 37
D-8000 München 80
Tel.: 089/982085-87
Telex: 0529802 hnkld
Telegramme: ellipsoid

17. Nov. 1971

PATENTANSPRÜCHE

1. Gasgemisch-Trennvorrichtung, g e k e n n z e i c h n e t durch eine mit einer Membran (5) versehene erste Trennzelle (3), durch eine ebenfalls mit einer Membran (12) versehene zweite Trennzelle (10), durch eine Speiseleitung (15) zur Zufuhr eines aufzutrennenden Gasgemisches zu einer Hochdruckkammer (4) der ersten Trennzelle, durch eine Auslaßleitung (7), um von der ersten Trennzelle entweder das durch ihre Membran hindurchgedrungene Gas oder das nicht durch diese Membran hindurchgetretene Gas abzu ziehen, durch eine Verbindungsleitung (9) zur Leitung des anderen Gases von der ersten Trennzelle zur Hochdruckkammer (11) der zweiten Trennzelle, durch eine Rücklaufleitung (14), um der Speiseleitung entweder das durch die Membran der zweiten Trennzelle hindurchgedrungene Gas oder das nicht durch diese Membran hindurchgetretene Gas zurückzuführen, und durch eine Austragleitung (18) zur Abfuhr des anderen Gases von der zweiten Trennzelle.
2. Vorrichtung nach Anspruch 1, dadurch g e k e n n z e i c h n e t , daß die Gase die erste und die zweite Trennzelle in beliebiger Kombination von Gegenströmung, Gleichströmung, Querströmung und vollständiger Mischströmung durchströmen.

709821/0932

- 2052402
3. Vorrichtung nach Anspruch 1, dadurch g e k e n n -
z e i c h n e t , daß die Membranen beider Trennzellen
die gleiche Gasdurchlässigkeit besitzen, daß die Auslaß-
leitung das die Membran der ersten Trennzelle durchdringen-
de Gas von deren Niederdruckkammer abführt, daß die Ver-
bindungsleitung das nicht durch die Membran der ersten
Trennzelle hindurchgetretene Gas von deren Hochdruckkammer
zur Hochdruckkammer der zweiten Trennzelle leitet, daß
die Rücklaufleitung das die Membran der zweiten Trennzelle
durchdringende Gas von deren Niederdruckkammer zur Speise-
leitung zurückführt, und daß über die Austragleitung das
nicht durch die Membran der zweiten Trennzelle hindurchge-
tretene Gas von deren Hochdruckkammer austragbar ist.
 4. Vorrichtung nach Anspruch 3, dadurch g e k e n n -
z e i c h n e t , daß eine von der Auslaßleitung zur
Speiseleitung verlaufende Rücklaufleitung vorgesehen ist.
 5. Vorrichtung nach Anspruch 3, dadurch g e k e n n -
z e i c h n e t , daß eine von der Austragleitung zur
Verbindungsleitung verlaufende Rücklaufleitung vorgesehen
ist.
 6. Vorrichtung nach Anspruch 3, dadurch g e k e n n -
z e i c h n e t , daß eine von der Austragleitung zur
Speiseleitung verlaufende Rücklaufleitung vorgesehen ist.
 7. Vorrichtung nach Anspruch 3, dadurch g e k e n n -
z e i c h n e t , daß eine von der Verbindungsleitung
zur Speiseleitung verlaufende Rücklaufleitung vorgesehen
ist.
 8. Vorrichtung nach Anspruch 3, dadurch g e k e n n -
z e i c h n e t , daß eine von der Auslaßleitung zur
Speiseleitung verlaufende Rücklaufleitung und eine von der

709821/0932

3

Austragleitung zur Verbindungsleitung verlaufende Rücklaufleitung vorgesehen sind.

9. Vorrichtung nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß eine von der Austragleitung zur Verbindungsleitung verlaufende Rücklaufleitung und eine von der Verbindungsleitung zur Speiseleitung verlaufende Rücklaufleitung vorgesehen sind.
10. Vorrichtung nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß eine von der Austragleitung zur Speiseleitung verlaufende Rücklaufleitung und eine von der Austragleitung zur Verbindungsleitung verlaufende Rücklaufleitung vorgesehen sind.
11. Vorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Membranen der ersten und der zweiten Trennzelle jeweils die gleiche Gasdurchlässigkeit besitzen, daß über die Auslaßleitung ein die Membran der ersten Trennzelle nicht durchdringendes Gas von deren Hochdruckkammer abziehbar ist, daß die Verbindungsleitung ein die Membran der ersten Trennzelle durchdringendes Gas von deren Niederdruckkammer zur Hochdruckkammer der zweiten Trennzelle führt, daß die Rückführleitung ein nicht durch die Membran der zweiten Trennzelle hindurchgedrungenes Gas von deren Hochdruckkammer zur Speiseleitung zurückführt, und daß die Austragleitung das durch die Membran der zweiten Trennzelle hindurchgetretene Gas von deren Niederdruckkammer abzieht.
12. Vorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Membranen der ersten und der zweiten Trennzelle einander entgegengesetzte Gasdurchlässigkeiten besitzen, daß die Auslaßleitung ein nicht durch die Membran der ersten Trennzelle hindurchgeströmtes

Gas von ihrer Hochdruckkammer abführt, daß die Verbindungsleitung ein die Membran der ersten Trennzelle durchdringendes Gas zur Hochdruckkammer der zweiten Trennzelle liefert, daß die Rückführleitung das die Membran der zweiten Trennzelle durchdringende Gas zur Speiseleitung zurückführt, und daß die Austragleitung das nicht durch die Membran der zweiten Trennzelle hindurchgetretene Gas von deren Hochdruckkammer abführt.

13. Vorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Membranen der ersten und der zweiten Trennzelle einander entgegengesetzte Gasdurchlässigkeiten besitzen, daß die Auslaßleitung ein die Membran der ersten Trennzelle durchdringendes Gas von deren Niederdruckkammer abführt, daß die Verbindungsleitung ein nicht durch die Membran der ersten Trennzelle hindurchgedrungenes Gas zu deren Hochdruckkammer bzw. zur Hochdruckkammer der zweiten Trennzelle leitet, daß die Rückführleitung das nicht durch die Membran der zweiten Trennzelle hindurchgedrungene Gas zur Speiseleitung zurückführt, und daß die Austragleitung das die Membran der zweiten Trennzelle durchdringende Gas an deren Niederdruckkammer abzieht.

5

Tokyo Shibaura Electric Co., Ltd.,
Kawasaki-shi, Japan

Möhlstraße 37
D-8000 München 80

Tel.: 089/982085-87
Telex: 0529802 hnkld
Telegramme: ellipsoid

17. Nov. 1976

Gasgemisch-Trennvorrichtung

Die Erfindung betrifft eine mit Membran versehene Gasgemisch-Trennvorrichtung, insbesondere einen Gasgemischscheider mit zwei jeweils eine Membran enthaltenden Trennzellen, die durch Abscheidung ein angereichertes Gas bzw. durch Abscheidung ein verdünntes Gas liefern.

Eine Scheider- bzw. Trennzelle einer derzeit bekannten Gasgemisch-Trennvorrichtung ist mit einer oder mit zwei Arten von Membranen versehen. Die verwendeten Membranen bestehen dabei aus Silikongummi, Palladium, Polytetrafluoräthylen und Zelluloseacetat.

Die mit einer einzigen Membranart versehene Trennzelle und die mit zwei verschiedenen Membranen ausgerüstete Trennzelle, wie sie bisher verwendet wurden, sind mit dem Mangel behaftet, daß beide Trennzellentypen nur eine niedrige Abtrennleistung besitzen, so daß eine große Zahl von Trennzellen in Kaskadenschaltung angeordnet werden muß, um ein Gas mit ausreichend hoher oder niedriger Konzentration zu liefern. Aus diesem

Grund erwies es sich als notwendig, eine Gasgemisch-Trennvorrichtung mit hohem Scheidewirkungsgrad zu entwickeln.

Aufgabe der Erfindung ist damit die Schaffung einer Gasgemisch-Trennvorrichtung mit einer hauptsächlich für die Gasanreicherung vorgesehenen Trennzelle und einer hauptsächlich für die Gasverdünnung dienenden Trennzelle, wobei beide Trennzellen äußerst effektiv die einer Membran eigene Gastrennfähigkeit, die sich z.B. durch Trennfaktor (separation factor) und Durchlässigkeit bestimmt, und die erhöhte Gastrennleistung aufgrund ihrer Strömungsschemata auszunutzen vermögen.

Diese Aufgabe wird bei einer Gasgemisch-Trennvorrichtung der angegebenen Art erfindungsgemäß gelöst durch eine mit einer Membran versehene erste Trennzelle, durch eine ebenfalls mit einer Membran versehene zweite Trennzelle, durch eine Speiseleitung zur Zufuhr eines aufzutrennenden Gasgemisches zu einer Hochdruckkammer der ersten Trennzelle, durch eine Auslaßleitung, um von der ersten Trennzelle entweder das durch ihre Membran hindurchgedrungene Gas oder das nicht durch diese Membran hindurchgetretene Gas abzuziehen, durch eine Verbindungsleitung zur Leitung des anderen Gases von der ersten Trennzelle zur Hochdruckkammer der zweiten Trennzelle, durch eine Rücklaufleitung, um der Speiseleitung entweder das durch die Membran der zweiten Trennzelle hindurchgedrungene Gas oder das nicht durch diese Membran hindurchgetretene Gas zurückzuführen, und durch eine Austragleitung zur Abfuhr des anderen Gases von der zweiten Trennzelle.

Im folgenden sind bevorzugte Ausführungsformen der Erfindung anhand der beigefügten Zeichnung näher erläutert. Es zeigen:

Fig. 1 ein Fließdiagramm zur schematischen Darstellung einer Gasgemisch-Trennvorrichtung mit Merkmalen nach der Erfindung,

Fig. 2 eine teilweise im Schnitt gehaltene, perspektivische Darstellung einer bei der erfindungsgemäßen Gasgemisch-Trennvorrichtung verwendeten Trennzelle, und

Fig. 3 ein Fließdiagramm einer Anzahl von in Kaskade geschalteten Gasgemisch-Trennvorrichtungen gemäß Fig. 1.

Bei der erfindungsgemäßen Gasgemisch-Trennvorrichtung wird ein abgetrenntes angereichertes Gas von einer ersten Trennzelle und ein abgetrenntes verdünntes Gas von einer zweiten Trennzelle abgezogen, oder umgekehrt. Die erfindungsgemäße Vorrichtung kann verschiedenartig aufgebaut sein, abhängig davon, ob ein Gas von der Hochdruck- oder von der Niederdruckseite einer Trennzelle her durch eine Membran hindurchtritt oder nicht. Für den Abzug des Gases von Hoch- und Niederdruckkammern der ersten und der zweiten Trennzelle kommen die folgenden vier Fälle in Betracht:

1. Das Gas wird von der Niederdruckkammer der ersten Trennzelle und von der Hochdruckkammer der zweiten Trennzelle abgenommen;
2. das Gas wird an der Hochdruckkammer der ersten Trennzelle und an der Niederdruckkammer der zweiten Trennzelle ausgetragen;
3. das Gas wird von den Hochdruckkammern beider Trennzellen abgezogen; und
4. das Gas wird von den Niederdruckkammern beider Trennzellen abgezogen.

Die vorstehend unter 1. und 2. erwähnten Arbeitsweisen gelten gleichermaßen für den Fall, daß die Membranen der ersten und der zweiten Trennzelle die gleiche Gasdurchlässigkeit besitzen. Die unter 3. und 4. genannten Arbeitsweisen gelten beide für den Fall, daß die Membranen beider Trennzellen entgegengesetzte Gasdurchlässigkeitseigenschaften besitzen.

Im folgenden ist anhand der Zeichnung eine typische Ausführungsform der Erfindung im Zusammenhang mit der vorstehend unter 1. erwähnten Arbeitsweise erläutert.

Die in Fig. 1 schematisch dargestellte Gasgemisch-Trennvorrichtung besteht aus einer Kombination von zwei Trennzellen mit jeweils gleicher Gasdurchlässigkeitseigenschaft, nämlich von der Art, die ein angereichertes Gas durch Abtrennung (im folgenden als "Anreicherungs-Trennzelle" bezeichnet) bzw. ein verdünntes Gas durch Abtrennung (im folgenden als "Verdünnungs-Trennzelle" bezeichnet) liefert. Das zu behandelnde, von einem Gasgemischvorrat 1 zugeführte Gasgemisch wird in einem durch eine Pumpe 2 unter einen vorbestimmten Druck gesetzten Zustand in eine Hochdruckkammer 4 einer ersten Trennzelle 3 eingeleitet. Ein Teil des in die Hochdruckkammer 4 der ersten Trennzelle 3 eintretenden Gases tritt durch die Membran 5 dieser Trennzelle 3 hindurch in deren Niederdruckkammer 6 ein, um dann über eine Auslaßleitung 7 in einen an der Konzentrationsseite der Vorrichtung angeordneten Behälter 8 für abgetrenntes Gas geleitet zu werden. Das nicht durch die Membran 5 der ersten Trennzelle 3 hindurchgetretene Gas wird dagegen über eine Verbindungsleitung 9 in eine Hochdruckkammer 11 einer zweiten Trennzelle 10 geleitet. Ein Teil des in die Hochdruckkammer 11 der zweiten Trennzelle 10 einströmenden Gases gelangt durch deren Membran 12 hindurch in die Niederdruckkammer 13, um dann über eine Rückführleitung 14 in eine Speiseleitung 15 eingeführt und einer frischen

Charge des vom Vorrat 1 gelieferten, unbehandelten Gasgemisches zugesetzt zu werden. Das nicht durch die Membran 12 der zweiten Trennzelle 10 hindurchgetretene Gas strömt über eine Austragleitung 18 und ein Druckminderventil 16 zu einem zweiten Scheidegasbehälter 17. Die Komponenten eines vom Vorrat 1 gelieferten Gasgemisches werden somit in angereicherter und verdünnter Form getrennt. Die vorstehenden Erläuterungen beziehen sich auf den Fall, in welchem die Membranen der ersten und der zweiten Trennzelle 3 bzw. 10 von der Art sind, daß die Ziel- oder Sollkomponente eines zu behandelnden Gasgemisches durch Durchdringung (permeation) angereichert werden kann. Die Komponenten eines Gasgemisches können jedoch auch dann getrennt werden, wenn eine für Verdünnung ausgelegte Membran verwendet wird. Hierbei besteht der Unterschied darin, daß Anreicherungs- und Verdünnungsseite der Gasgemisch-Trennvorrichtung im Vergleich zum zuerst genannten Fall entgegengesetzt geschaltet sind.

Nachstehend sind Zahlenwerte für die Teile der Trennvorrichtung gemäß Fig. 1 angegeben. Anhand des Fließdiagramms von Fig. 1 sei nunmehr angenommen, daß mit Z die Konzentration eines Ziel- oder Sollgases in dem zu behandelnden Gasgemisch, mit F die Strömungsgeschwindigkeit oder -menge des Gasgemisches, mit Z^* die Konzentration eines durch die Membran 12 der zweiten Trennzelle 10 hindurchgedrungenen Gases bei nach Rückführung erfolgender Vereinigung mit einer vom Vorrat 1 zugeführten frischen Gasgemischcharge und mit F^* die Strömungsgeschwindigkeit oder -menge eines Gasgemisches, einschließlich des Rückführteils, bezeichnet sind. Weiterhin sei angenommen, daß θ_1 den Schnitt (cut) bzw. das Verhältnis L_1'/L_1 (worin L_1 die Strömungsmenge eines der ersten Trennzelle 3 zugeführten Gases und L_1' die Strömungsmenge eines die Membran 5 der ersten Trennzelle 3 durchdringenden Gases bedeuten) und θ_2

einen ähnlichen Schnitt bzw. ein ähnliches Verhältnis für die zweite Trennzelle 10 angeben. Weiterhin sind mit g_1 und h_1 der Anreicherungs-Trennfaktor der ersten Trennzelle 3 (das Verhältnis der Ausgangskonzentration des in der Zelle 3 angereicherten Gases zur Konzentration des der Zelle 3 eingespeisten Gases) bzw. der Verdünnungs-Trennfaktor der Zelle 3 (Verhältnis zwischen Ausgangskonzentration des in der Zelle 3 verdünnten Gases und der Konzentration des der Zelle 3 eingegebenen Gases) bezeichnet. Ebenso bedeuten g_2 und h_2 den Anreicherungs-Trennfaktor bzw. den Verdünnungs-Trennfaktor der zweiten Trennzelle 10. Die Faktoren g_1 , h_1 und g_2 , h_2 sind Funktionen der vorgenannten Schnitte bzw. Verhältnisse θ_1 bzw. θ_2 .

Wenn die Membranen 5 und 12 der beiden Trennzellen 3 bzw. 10 von gleicher Art sind, welche die Anreicherung der Sollkomponente eines zu behandelnden Gasgemisches zuläßt, lassen sich die Konzentration des die Membran 5 der ersten Zelle 3 durchdringenden Gases mit Z^*g_1 und die Strömungsmenge dieses Gases mit $F^*\theta_1$ bezeichnen. Die Konzentration des nicht durch die Membran 5 der ersten Zelle 3 hindurchgetretenen Gases ist mit Z^*h_1 und seine Strömungsmenge mit $F^*(1-\theta_1)$ bezeichnet. Konzentration und Strömungsmenge des die Membran 12 der zweiten Trennzelle 10 durchdringenden Gases sind mit $Z^*h_1g_2$ bzw. $F^*(1-\theta_1)$ bezeichnet. Die Konzentration des nicht durch die Membran 12 der zweiten Zelle 10 hindurchgetretenen Gases ist als $Z^*h_1h_2$ und seine Strömungsmenge als $F^*(1-\theta_1)(1-\theta_2)$ ausgedrückt. Der Scheide- bzw. Trennfaktor von erster und zweiter Trennzelle 3 bzw. 10 läßt sich daher als $\alpha_1 (=Z^*g_1/Z^*h_1=g_1/h_1)$ bzw. als $\alpha_2 (Z^*h_1g_2/Z^*h_1h_2=g_2/h_2)$ ausdrücken, während sich der Gesamttrennfaktor der gesamten Gasgemisch-Trennvorrichtung als $\alpha_{st} (=Z^*g_1/Z^*h_1h_2=g_1/h_1h_2)$ ausdrücken läßt. Da gilt $h_2 < 1,0$, ist α_{st} größer als α_1 . Wenn der Schnitt bzw. das

M

Verhältnis θ_2 der Verdünnungs-Trennzelle so gewählt ist, daß $g_2 < \alpha_1$ gilt, ist es möglich $\alpha_{st} > \alpha_2$ zu erzielen. Infolgedessen kann eine Gasgemisch-Trennvorrichtung, die sowohl Anreicherungs- als auch Verdünnungstrennzellen aufweist, einen größeren Trenn- oder Scheidefaktor gewährleisten als eine nur eine Trennzelle aufweisende Vorrichtung dieser Art.

Wenn die Membranen 5, 12 beider Trennzellen 3 bzw. 10 jeweils von gleicher Art sind, welche eine Verdünnung eines Ziel- oder Sollgases durch Durchdringung ermöglicht, lassen sich die Konzentration des die Membran 5 der ersten Trennzelle 3 durchdringenden Gases mit Z^*h_1 , seine Strömungsmenge als $F^*\theta_1$, die Konzentration des nicht durch die Membran 5 der ersten Zelle 3 hindurchtretenden Gases als Z^*g_1 , seine Strömungsmenge als $F^*(1-\theta_1)$, die Konzentration des die Membran 12 der zweiten Zelle 10 durchdringenden Gases als $Z^*g_1h_2$, seine Strömungsmenge als $F^*(1-\theta_1)\theta_2$, die Konzentration des nicht durch die Membran 12 der zweiten Zelle 10 hindurchgetretenen Gases als $Z^*g_1g_2$ und die Strömungsmenge dieses Gases als $F^*(1-\theta_1)(1-\theta_2)$ ausdrücken. Der Trennfaktor der ersten Trennzelle 3 kann daher mit $\alpha_1 (=g_1/h_1)$, der Trennfaktor der zweiten Trennzelle 10 mit $\alpha_2 (=g_2/h_2)$ und der Gesamttrennfaktor der gesamten Vorrichtung mit $\alpha_{st} (=g_1g_2/h_1)$ angegeben werden. Wenn der Schnitt bzw. das Verhältnis θ_2 der Anreicherungs-Trennzelle so gewählt ist, daß $\alpha_1 > 1/h_2$ gilt, kann eine sowohl Anreicherungs- als auch Verdünnungs-Trennzellen aufweisende Gasgemisch-Trennvorrichtung einen größeren Trennfaktor besitzen als eine nur eine einzige dieser Trennzellen besitzende Vorrichtung.

Der Gesamt-Anreicherungs-trennfaktor der gesamten Vorrichtung gemäß der Erfindung (d.h. das Verhältnis zwischen der Konzentration des durch die Trennvorrichtung angereicherten Gases und der Konzentration eines der Trennvorrichtung zugeführten Gasgemisches, einschließlich ihres Rückführteils) sowie

der Gesamt-Verdünnungsfaktor der gesamten Vorrichtung (Verhältnis zwischen der Konzentration des durch die Trennvorrichtung verdünnten Gases und der Konzentration eines der Vorrichtung, einschließlich ihres Rückführteils, eingespeisten Gasgemisches) besitzen die nachstehend noch näher angegebenen Beziehungen zu θ_1 , θ_2 , g_1 , g_2 , h_1 und h_2 .

- (a) Bei Verwendung einer Membran, die ein Ziel- oder Sollgas durch Durchdringung anzureichern vermag:

$$\text{Anreicherungs-Trennfaktor} = \frac{z \cdot g_1}{z^*} = \frac{\theta_1 + (1 - \theta_1)(1 - \theta_2)}{g_1 \theta_1 + (1 - \theta_1)(1 - \theta_2) h_1 h_2} \cdot g_1$$

$$\text{Verdünnungs-Trennfaktor} = \frac{z \cdot h_1 h_2}{z} = \frac{\theta_1 + (1 - \theta_1)(1 - \theta_2)}{g_1 \theta_1 + (1 - \theta_1)(1 - \theta_2) h_1 h_2} \cdot h_1 h_2$$

Wenn daher die Schnitte bzw. Verhältnisse θ_1 , θ_2 mit einem geeigneten Wert gewählt werden, vermag die erfindungsgemäße Gasgemisch-Trennvorrichtung einen gewünschten Anreicherungs- und Verdünnungsgrad zu gewährleisten.

$$(i) \quad \theta_1 > 1 - \frac{1}{1 + (1 - \theta_2) \sqrt{\frac{h_1 h_2}{g_1}}}$$

In diesem Fall erfolgt die Verdünnung in größerem Ausmaß als die Anreicherung.

$$(ii) \quad \theta_1 = 1 - \frac{1}{1 + (1 - \theta_2) \sqrt{\frac{h_1 h_2}{g_1}}}$$

Dabei erfolgen Anreicherung und Verdünnung im gleichen Prozentsatz.

$$(iii) \quad \theta_1 < 1 - \frac{1}{1 + (1 - \theta_2) \sqrt{\frac{h_1 h_2}{g_1}}}$$

In diesem Fall erfolgt die Anreicherung in größerem Ausmaß als die Verdünnung.

- (b) Bei Verwendung einer ein Ziel- oder Sollgas durch Durchdringung verdünnenden Membran:

$$\text{Anreicherungs-Trennfaktor} = \frac{z^* g_1 g_2}{z^*} = \frac{\theta_1 + (1-\theta_1)(1-\theta_2)}{h_1 \theta_1 + (1-\theta_1)(1-\theta_2) g_1 g_2} \cdot g_1 g_2$$

$$\text{Verdünnungs-Trennfaktor} = \frac{z^* h_1}{z} = \frac{\theta_1 + (1-\theta_1)(1-\theta_2)}{h_1 + \theta_1 + (1-\theta_1)(1-\theta_2) g_1 g_2} \cdot h_1$$

Wenn dabei die Schnitte bzw. Verhältnisse θ_1, θ_2 mit den richtigen Werten gewählt werden, vermag die erfindungsgemäße Gasgemisch-Trennvorrichtung jeden gewünschten Anreicherungs- und Verdünnungsgrad zu gewährleisten.

$$(i) \quad \theta_1 > 1 - \frac{1}{1 + (1-\theta_2) \sqrt{\frac{g_1 g_2}{h_1}}}$$

Hierbei erfolgt die Anreicherung zu einem höheren Grad als die Verdünnung.

$$(ii) \quad \theta_1 = 1 - \frac{1}{1 + (1-\theta_2) \sqrt{\frac{g_1 g_2}{h_1}}}$$

In diesem Fall finden Anreicherung und Verdünnung im gleichen Prozentsatz statt.

$$(iii) \quad \theta_1 < 1 - \frac{1}{1 + (1-\theta_2) \sqrt{\frac{g_1 g_2}{h_1}}}$$

Dabei erfolgt die Verdünnung in stärkerem Maß als die Anreicherung.

Fig. 2 veranschaulicht die konkrete Form der ersten und der zweiten, die erfindungsgemäße Gasgemisch-Trennvorrichtung bildenden Trennzellen 3 bzw. 10. Die Gastrennzelle besteht

aus einem zylindrischen Körper 20 mit einem Austragrohr 21, einer mit einem Speiser 23 versehenen (Verschluß)-Kappe 22, einer mit einem Auslaß- oder Austragrohr 25 versehenen (Verschluß)-Kappe 24, einer großen Zahl von den zylindrischen Körper axial durchsetzenden, schlauch- oder rohrförmigen Membranen 26 sowie zwei Isolier- oder Dichtplatten 29, 30, welche die zahlreichen rohrförmigen Membranen 26 an beiden Enden halten. Die zwischen den Kappen 22, 24 und den betreffenden Isolierplatten 29, 30 gebildeten Zwischenräume 27, 28 sind durch die rohrförmigen Membranen 26 von einem im zylindrischen Körper 20 gebildeten Raum getrennt. Bei einer auf die beschriebene Weise ausgebildeten Gastrennzelle strömt das über den Speiser 23 in die Trennvorrichtung eingeführte Gasgemisch über den zwischen Kappe 22 und zugeordneter Isolierplatte 29 festgelegten Zwischenraum 27 in die rohrförmigen Membranen 26 ein und an deren Innenwänden entlang. Ein Teil des Gasgemisches dringt durch die rohrförmigen Membranen 26 hindurch in den Raum des zylindrischen Körpers 20 hinein, um über das Austragrohr 21 abgezogen zu werden. Der den Zwischenraum 28 zwischen der Kappe 24 und der zugeordneten Isolierplatte 30 durchströmende Anteil des Gasgemisches wird über das Austragrohr 25 von der Vorrichtung abgenommen. Obgleich die vorstehenden Ausführungen eine einzige Trennzelle betreffen, besitzt eine das Gegenstück bildende Trennzelle im wesentlichen denselben Aufbau. Um den Bedingungen für die erwähnten Schnitte bzw. Verhältnisse θ_1 , θ_2 zu genügen, müssen Rohrmembranen mit unterschiedlichen effektiven Membran(ober)-flächen verwendet werden. Die Beschreibung von Fig. 2 bezieht sich auf zwei Trennzellen, die jeweils gleich ausgebildet und mit Abstand voneinander angeordnet sind.

Fig. 3 veranschaulicht eine siebenstufige Kaskadenanordnung aus sieben Gruppen, die jeweils aus einer Gasgemisch-Trenn-

5045385 15

vorrichtung vorher beschriebener Art bestehen. Das vom Vorrat 1 zugeführte, zu behandelnde Gasgemisch wird durch eine Pumpe C-4 auf erhöhten Druck gebracht und in die erste Trennzelle A-4 der vierten Stufe eingeführt, in welcher das Gasgemisch in den Teil, welcher eine Membran D-4 der ersten Zelle A-4 durchdrungen hat, und in den nicht durch diese Membran hindurchgedrungenen Teil aufgetrennt wird. Der Druck des durch die Membran D-4 hindurchgetretenen Gases wird durch eine Pumpe C-5 erhöht, worauf das Gas zur ersten Trennzelle A-5 der fünften Stufe geleitet wird. Das nicht durch die Membran D-4 der vierten Stufe hindurchströmende Gas wird zur zweiten Trennzelle B-4 der vierten Stufe geleitet, worin das Gas ebenfalls in den die Membran E-4 der zweiten Trennzelle B-4 durchdringenden und den nicht durch die Membran hindurchdringenden Teil aufgetrennt wird. Das durch die Membran E-4 hindurchgetretene Gas wird zur Pumpe C-4 zurückgeleitet. Das nicht durch die Membran E-4 hindurchgetretene Gas wird durch eine Pumpe C-3 einer dritten Stufe im Druck erhöht und zur ersten Trennzelle A-3 der dritten Stufe gefördert. Dabei wird ein Gas, das die Membran D-7 einer ersten Trennzelle A-7 einer siebenten Stufe durchdrungen hat, in angereicherter Form abgezogen. Umgekehrt wird ein Gas, das die Membran E-1 der zweiten Trennzelle B-1 einer ersten Stufe nicht durchdrungen hat, in verdünnter Form ausgetragen.

Die vorstehend beschriebene Kaskadenanordnung von Trennzellen verwendet Membranen, welche eine Ziel- oder Sollgaskomponente durch Durchdringung anzureichern vermögen. Werden dagegen eine Verdünnung dieser Gaskomponente bewirkende Membranen verwendet, so werden die Anreicherungs- und Verdünnungsabschnitte gegenüber der beschriebenen Ausführungsform umgekehrt angeordnet. Dabei wird dann ein verdünntes Gas an der ersten Trennzelle A-7 der siebenten Stufe und ein angereichertes Gas an der zweiten Trennzelle B-1 der ersten Stufe abgezogen.

Wie erwähnt, kann die erfindungsgemäße Gasgemisch-Trennvorrichtung, die zwei Trennzellen und eine Pumpe aufweist, in Form einer mehrstufigen Kaskade angeordnet werden. Wenn bei dieser Kaskadenschaltung der erfindungsgemäßen Vorrichtungen mit jeweils zwei Trennzellen die Art der bei diesen Zellen verwendeten Membranen sowie die durch die Trennzellen bewirkten Schnitte bzw. Verhältnisse θ_1 , θ_2 richtig gewählt werden, kann der Gesamttrennfaktor der Kaskadenanordnung insgesamt im Vergleich zu den bisher üblichen Kaskadenanordnungen von Gasgemischseparatoren mit jeweils einer einzigen Scheider- oder Trennzelle erheblich verbessert werden.

Zur Verdeutlichung ist im folgenden der Fall beschrieben, in welchem Stickstoff und Krypton, die ein Gemisch bilden, voneinander getrennt werden. In diesem Fall zeigt ein bisher verwendeter Gasgemischseparator mit nur einer Silikongummimembran einen Trennfaktor von 4,30. Bei Verwendung zweier verschiedener Membranen, nämlich einer Silikongummimembran und einer Zelluloseacetatmembran, gewährleistet die bekannte Vorrichtung einen Trennfaktor von 4,59. Im Gegensatz dazu wird mit den erfindungsgemäßen Trennvorrichtungen, bei denen die Membranen der ersten und der zweiten Trennzellen jeweils aus Silikongummi bestehen und die Schnitte bzw. Verhältnisse θ_1 , θ_2 mit 0,054 bzw. 0,67 gewählt sind, ein Trennfaktor von 33,6 erreicht, d.h. ein erheblich größerer Wert als bei der bisher verwendeten Trennvorrichtung.

Die nachstehende Tabelle I veranschaulicht die Ergebnisse eines Vergleiches zwischen der Kaskadenanordnung der erfindungsgemäßen Trennvorrichtungen mit jeweils zwei Trennzellen und derjenigen der bisher verwendeten Trennvorrichtungen oder Separatoren mit jeweils nur einer einzigen Trennzelle.

17

Tabelle I

	Gastrennvorrichtung gemäß der Erfindung	Gastrennvorrichtung nach dem Stand der Technik (nur eine Membranart)
Abtrennfaktor	33,6	4,30
Zahl der Stufen	9,5	24,3
Erforderl. Membran- oberfläche	1,13	1,00
Leistungsbedarf	0,608	1,00

Die Stufenzahl und der Leistungsbedarf gemäß Tabelle I gelten für die Erzielung eines Verdünnungs-Abtrennfaktors von 10^{-4} und eines Anreicherungs-Abtrennfaktors von 10^4 . Die erforderliche Membran(ober)fläche und der Leistungsbedarf gemäß Tabelle I wurden bei gleichartigen Gastrennvorrichtungen ermittelt, bei denen eine einzige Art von Trennvorrichtungen vorgesehen war. Die Daten gemäß Tabelle I gelten für eine Gegenströmung der Gase in den Trennzellen der erfindungsgemäßen und der bisher verwendeten Gastrennvorrichtung.

Mit der erfindungsgemäßen Trennvorrichtung, die eine kleinere Zahl an Kaskadenstufen besitzt, kann somit die Zahl der erforderlichen Pumpen, Regelvorrichtungen, Instrumente usw. im Vergleich zum Stand der Technik wesentlich verringert werden.

Im folgenden ist die Erfindung in Beispielen näher erläutert.

Beispiel 1

Eine schlauch- bzw. rohrförmige Silikongummi-Membran mit einem Außendurchmesser von 1 mm und einen Innendurchmesser von 0,3 mm wurde als Membran 5 der ersten Trennzelle 3 und als Membran 12 der zweiten Trennzelle 10 für die Abtrennung von Stickstoff

und Krypton (100 ppm bzw. Teile pro Million Teile) aus einem Gemisch dieser Gase benutzt. Die Membranen 5 und 12 besaßen dabei eine Oberfläche von $4,91 \text{ m}^2$ bzw. $70,9 \text{ m}^2$. Ein Druckminderventil war dabei so eingestellt, daß der Schnitt bzw. das Verhältnis θ_1 auf $0,0437$, der Schnitt bzw. das Verhältnis θ_2 auf $0,659$, der Druck in den Hochdruckkammern 4 und 11 auf 10 kg/cm^2 (Meß- bzw. Überdruck) und der Druck in den Niederdruckkammern 6 und 13 auf 0 kg/cm^2 (Meßdruck) festgelegt waren. Die Konzentrationen der Gase und ihre Strömungsmengen oder -geschwindigkeiten in den verschiedenen Abschnitten der erfindungsgemäßen Gasgemisch-Trennvorrichtung sowie der Gesamt-Abtrennfaktor dieser Vorrichtung insgesamt sind in der nachstehenden Tabelle II angegeben.

Beispiel 2

Eine rohr- oder schlauchförmige Polybutadienkautschukmembran mit $0,3 \text{ mm}$ Außendurchmesser und $0,1 \text{ mm}$ Innendurchmesser wurde als Membran 5 der ersten Trennzelle 3 verwendet. Bei der zweiten Trennzelle 10 wurde eine rohrförmige Silikongummimembran mit $1,0 \text{ mm}$ Außendurchmesser und $0,3 \text{ mm}$ Innendurchmesser verwendet, welche dieselbe Gasdurchlässigkeit besaß wie die zuerst genannte Membran. Die Membranen wurden zur Auftrennung eines Gemisches aus Stickstoff und Krypton (100 ppm) benutzt. Die Membran 5 der ersten Trennzelle 3 und die Membran 12 der zweiten Trennzelle 10 besaßen dabei eine Oberfläche von $40,4 \text{ m}^2$ bzw. 140 m^2 . Ein Druckminderventil wurde so eingestellt, daß der Schnitt bzw. das Verhältnis θ_1 auf $0,0203$, der Schnitt bzw. das Verhältnis θ_2 auf $0,730$, der Druck in den Hochdruckkammern 4, 11 auf 10 kg/cm^2 (Meßdruck) und der Druck in den Niederdruckkammern 6, 13 auf 0 kg/cm^2 (Meßdruck) festgelegt waren. Die Gaskonzentrationen und -strömungsmengen in den verschiedenen Abschnitten der Trennvorrichtung sowie der Gesamt-Abtrennfaktor der Vorrichtung insgesamt sind wiederum in Tabelle II aufgeführt.

Beispiel 3

Eine rohr- oder schlauchförmige Silikongummimembran mit 1 mm Außendurchmesser und 0,3 mm Innendurchmesser wurde als Membran 5 der ersten Trennzelle und als Membran 12 der zweiten Trennzelle 10 für die Auftrennung eines Gasgemisches aus Xenon und Krypton (100 ppm) verwendet. Die beiden Membranen 5 und 12 besaßen dabei eine Oberfläche von $9,23 \text{ m}^2$ bzw. $49,7 \text{ m}^2$. Mittels eines Druckminderventils wurden der Schnitt bzw. das Verhältnis θ_1 auf 0,15, der Schnitt bzw. das Verhältnis θ_2 auf 0,95, der Druck in den Hochdruckkammern 4, 11 auf 10 kg/cm^2 (Meßdruck bzw. Überdruck) und der Druck in den Niederdruckkammern 6, 13 auf 0 kg/cm^2 (Meßdruck) eingestellt. Die Gaskonzentrationen und -strömungsmengen in den verschiedenen Abschnitten der erfindungsgemäßen Vorrichtung sind ebenfalls in Tabelle II angegeben.

	Beispiel 1	Beispiel 2	Beispiel 3
Konzentration einer frischen Gasgemischcharge (Z)	100 ppm	100 ppm	100 ppm
Gaskonzentration (einschl. Rücklaufteil) am Pumpeneinlaß (Z^*)	242 "	260 "	61,5 "
Konzentration d. durch die Membran der ersten Trennzelle durchgetretenen Gases ($Z^*_{g_1}$)	731 "	1298 "	28,6 "
Konzentration des nicht durch die Membran der ersten Trennzelle durchgetretenen Gases ($Z^*_{h_1}$)	220 "	238 "	62,0 "
Konzentration d. Gases durch Membran der zweiten Trennzelle ($Z^*_{h_1 g_1}$)	326 "	321 "	47,7 "
Konzentration d. nicht durch Membran der 2. Trennzelle hindurchgedrungenen Gases ($Z^*_{h_1 h_2}$)	14,1 "	8,04 "	326 "
Strömungsmenge einer frischen Gasgemischcharge (F)	1 Nm ³ /h	1 Nm ³ /h	1 Nm ³ /h
Strömungsmenge des Gasgemisches, einschl. Rücklaufteil, am Pumpeneinlaß (F^*)	2,70 "	3,51 "	5,19 "
Strömungsmenge des die Membran der 1. Trennzelle durchdringenden Gases ($F^* \theta_1$)	0,118 "	0,0713 "	0,779 "
Strömungsmenge des nicht durch Membran der 1. Trennzelle hindurchgetretenen Gases ($F^*(1-\theta_1)$)	2,59 "	3,44 "	4,41 "
Strömungsmenge des d. Membran der 2. Trennzelle durchdringenden Gases ($F^*(1-\theta_1)\theta_2$)	1,70 "	2,51 "	4,19 "
Strömungsmenge d. nicht durch d. Membran d. 2. Zelle hindurchgetr. Gases ($F^*(1-\theta_1)(1-\theta_2)$)	0,882 "	0,929 "	2,21 "
Gesamt-Abtrennfaktor d. gesamten Gasgemisch-Trennvorr.	52,0	154	11,4

Tabelle II zeigt, daß jede Ausführungsform der erfindungsgemäßen Gasgemisch-Trennvorrichtung einen wesentlich höheren Gastrennfaktor oder ein erheblich höheres Gastrennvermögen besitzt als ähnliche Vorrichtungen nach dem Stand der Technik.

Die vorstehende Beschreibung betrifft den Fall der Auftrennung eines Gemisches aus Stickstoff und Krypton oder Xenon und Krypton in die jeweiligen Komponenten. Die Erfindung ist jedoch auch auf andere Gasgemische anwendbar. Beispielsweise eignet sich die Erfindung für die Abtrennung einer gesuchten Gaskomponente aus einem beliebigen Gemisch aus zwei oder mehr Gasen, wie H_2 , He, N_2 , O_2 , Luft, Ne, Ar, Kr, Xe, Rn, F_2 , Cl_2 , Br_2 , I_2 , UF_6 , O_3 , H_3 , C_mH_n (Kohlenwasserstoff), SO_2 , C_2H_3Cl (Vinylchloridmonomer), C_2H_3CN (Acrylnitril), NO_x und Isotopen dieser Gase. Die für die Membranen der beiden Trennzellen geeigneten Materialien sind Silikongummi, Polybutadien-Gummi bzw. -Kautschuk, Polyäthylén, Tetramethylpentanharz, Zelluloseacetat, Äthylzellulose, Nuclear Pore (Warenzeichen der General Electric Company of the United States), Tetrafluoräthylén, Polyester und poröse Metallmembranen.

Außerdem bezieht sich die vorstehende Beschreibung auf den Fall, in welchem die Gase in beiden Trennzellen im Gegenstrom strömen. Daneben können die Gase die beiden Trennzellen jedoch auch im Gleichstrom, im Querstrom oder im vollständigen Mischstrom durchströmen. Die Schnitte oder Verhältnisse θ_1 , θ_2 können durch Einstellung z.B. eines Druckminder- oder -reduzier-ventils, eines Druck- oder Strömungsregelventils oder einer Druckbelüftungsvorrichtung geregelt werden. Die Membranen können als Rohr bzw. Schlauch, flache Platte, spiralgewickelte Platte oder Hohlaser hergestellt werden, wobei letztere einen porösen Kern aus Korn- oder Drahtwerkstoff enthalten kann.

Die zweite Trennzelle 10 der Vorrichtung gemäß Fig. 1 ist mit

einem Rückführrohr zur Rückleitung des die Membran 12 der zweiten Trennzelle 10 durchdringenden Gases zur Einlaßseite der ersten Trennzelle 3 versehen. Die erfindungsgemäße Vorrichtung kann jedoch zusätzlich mit einer beliebigen der in Fig. 1 in gestrichelten Linien eingezeichneten Rücklaufleitungen a, b, c, d ausgerüstet sein, nämlich

- a) einer von der Austragleitung 7 zur Speiseleitung 15 verlaufenden Rücklaufleitung,
- b) einer von der Austragleitung 18 zur Verbindungsleitung 9 führenden Rücklaufleitung,
- c) einer von der Austragleitung 18 zur Speiseleitung 15 führenden Rücklaufleitung und/oder
- d) einer von der Verbindungsleitung 9 zur Speiseleitung 15 verlaufenden Rücklaufleitung.

Dabei ist es möglich, zwei der genannten Rücklaufleitungen, d.h. a und b, b und c oder b und d, vorzusehen. Bei Anwendung der Rücklaufleitungen c und d muß für diese beiden Leitungen ein Druckminderventil vorgesehen werden. Außerdem ist es dabei manchmal nötig, eine Pumpe in diese Rücklaufleitungen einzuschalten.

Die vorstehenden Ausführungen beziehen sich auf die in Fig. 1 dargestellte Ausführungsform der Erfindung, bei welcher die Membranen der ersten und der zweiten Trennzelle, jeweils die gleiche Gasdurchlässigkeit besitzen, wobei ein durch die Membran der ersten Trennzelle 3 hindurchgedrungenes, angereichertes oder verdünntes Gas von der Niederdruckkammer der Zelle 3 abgezogen und ein nicht durch die Membran der zweiten Trennzelle 10 hindurchgedrungenes Gas an der Hochdruckkammer der Zelle 10 ausgetragen wird.

Im folgenden sind weitere Ausführungsformen der Erfindung umrissen.

- A) Eine Gasgemisch-Trennvorrichtung, bei welcher die Membranen der beiden Trennzellen die gleiche Gasdurchlässigkeit besitzen, ein die Membran der ersten Zelle durchdringendes Gas in die Hochdruckkammer der zweiten Zelle eingeführt wird, ein nicht durch die Membran der ersten Trennzelle hindurchgetretenes Gas in verdünnter oder angereicherter Form abgezogen wird, ein durch die Membran der zweiten Zelle hindurchgetretenes Gas in angereicherter oder verdünnter Form ausgetragen wird und ein nicht durch die Membran der zweiten Trennzelle hindurchgedrungenes Gas zur Einlaßseite der ersten Trennzelle zurückgeführt wird.
- B) Eine Gasgemisch-Trennvorrichtung, bei welcher die Membranen der beiden Trennzellen jeweils entgegengesetzte Gasdurchlässigkeit besitzen, ein die Membran der ersten Trennzelle durchdringendes Gas in die Hochdruckkammer der zweiten Trennzelle geleitet wird, ein die Membran der ersten Zelle nicht durchdringendes Gas in verdünnter oder angereicherter Form abgenommen wird, ein die Membran der zweiten Zelle durchdringendes Gas zur Einlaßseite der ersten Zelle zurückgeführt wird und ein die Membran der zweiten Zelle nicht durchdringendes Gas in angereicherter oder verdünnter Form abgezogen wird.
- C) Eine Gasgemisch-Trennvorrichtung, bei welcher die Membranen der beiden Trennzellen einander entgegengesetzte Gasdurchlässigkeit besitzen, ein die Membran der ersten Trennzelle durchströmendes Gas in angereicherter oder verdünnter Form abgezogen wird, ein die Membran der ersten Zelle nicht durchdringendes Gas in die Hochdruckkammer der zweiten Zelle eingeführt wird, ein die Membran der zweiten Zelle durchströmendes Gas in verdünnter oder angereicherter Form abgezogen wird

94
und ein die Membran der zweiten Zelle nicht durchströmendes Gas zur Einlaßseite der ersten Trennzelle zurückgeführt wird.

Die vorstehend umrissenen, abgewandelten Ausführungsformen der Erfindung haben sich als die gleiche vorteilhafte Gasabtrennleistung wie die Ausführungsform gemäß Fig. 1 besitzend erwiesen. Bei allen diesen Ausführungsformen kann eine Pumpe zwischen erster und zweiter Trennzelle angeordnet sein.

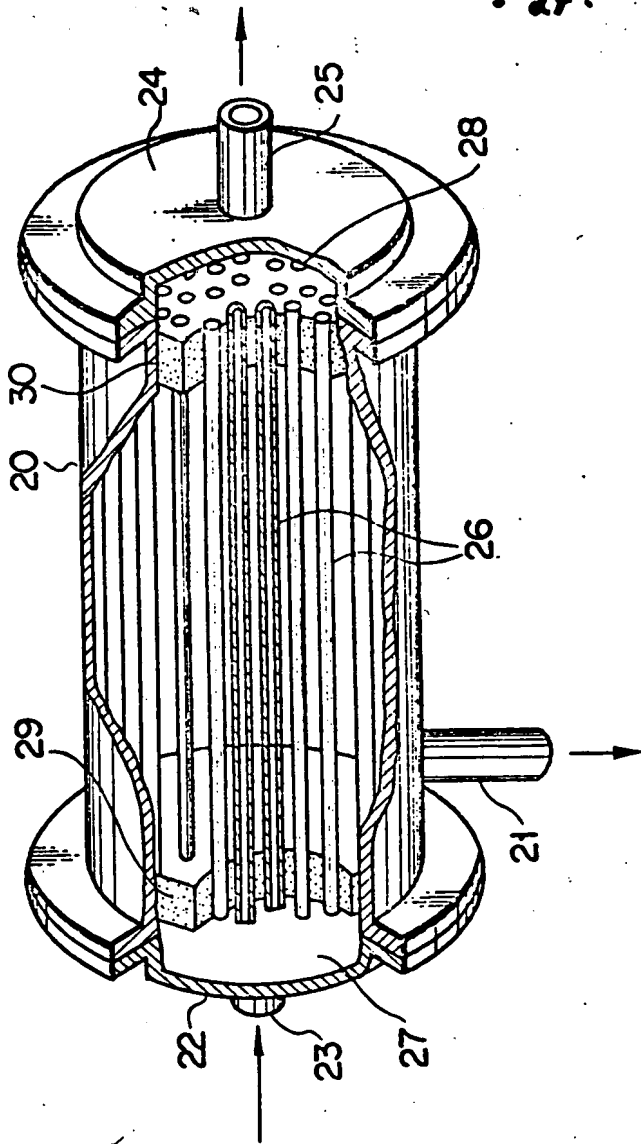
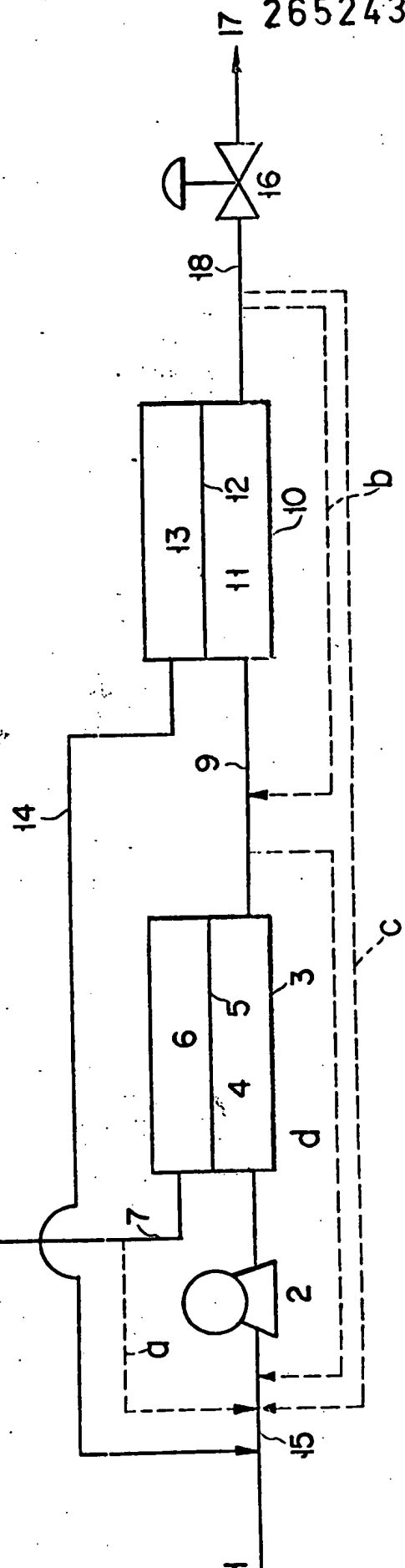
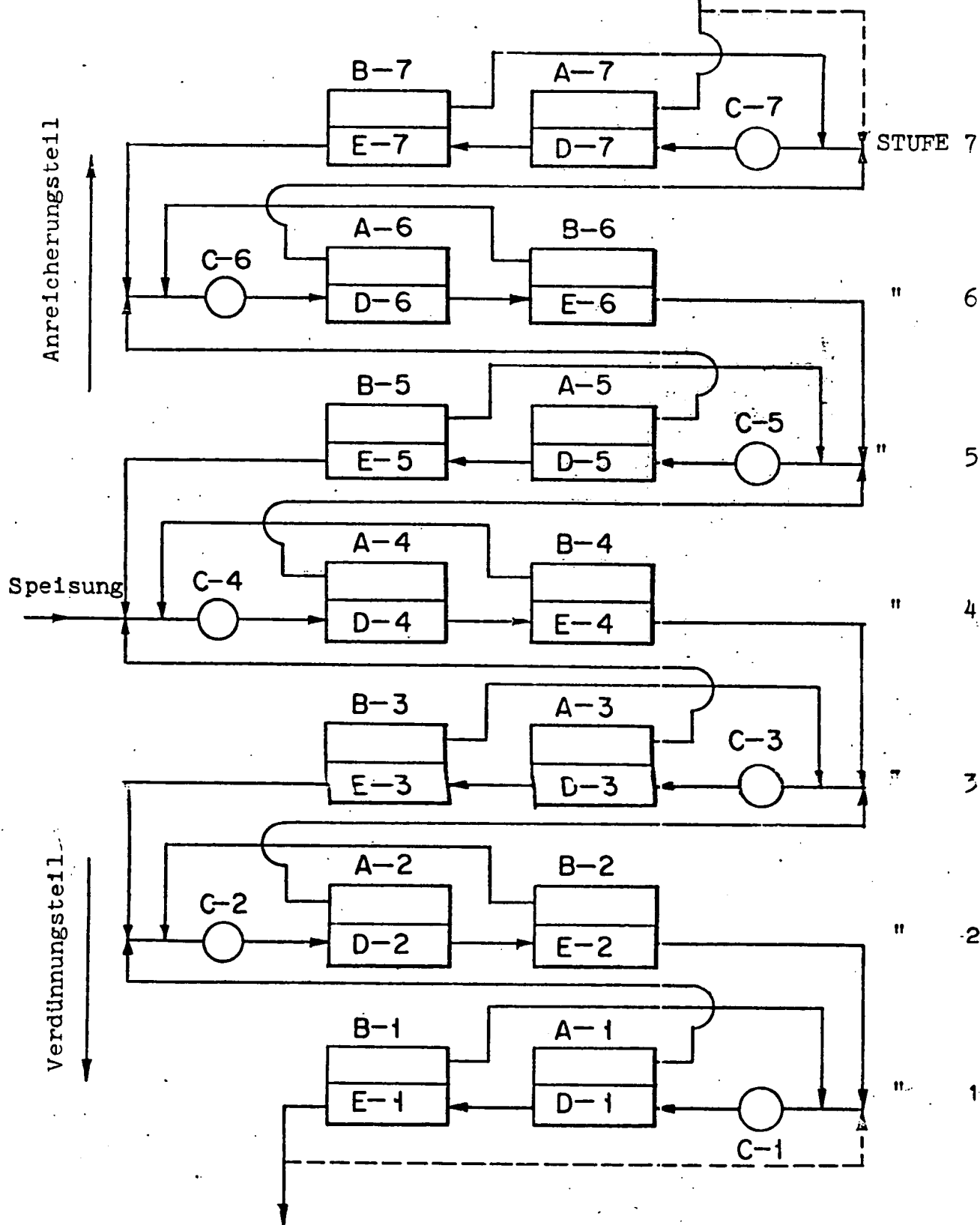


FIG. 2

FIG. 1





Tokyo Shibaura Electric Co., Ltd.
Kawasaki-shi, Japan